

ПРИМЕНЕНИЕ ЯДЕРНОГО СКАНИРУЮЩЕГО МИКРОЗОНДА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ РАДИАЦИОННО-СТИМУЛИРОВАННОЙ МИГРАЦИИ ПРИМЕСЕЙ ПО ГРАНИЦАМ ЗЕРЕН В КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ

А.В. Романенко, А.Г. Пономарев

*Институт прикладной физики Национальной академии наук Украины,
ул. Петропавловская 58, Сумы, 40000, Украина,
romanenko@ipflab.sumy.ua, ponom@ipflab.sumy.ua*

Рассмотрено применение ядерного сканирующего микрозонда в исследованиях радиационно-стимулированной миграции примесей на границах зерен в конструкционных материалах. Работа посвящена подготовке образцов для проведения облучения микроскопических областей включающих несколько зерен. Образец представляют собой медь с нанесенной пленкой серы. Определение химического состава образцов, а также построение карт распределения элементов проводилось на основе анализа выхода характеристического рентгеновского излучения являющегося продуктом взаимодействия облучаемых частиц с атомами мишени. С помощью метода микро-PIXE получены двумерные карты распределения элементов, которые выявили наличие хаотично расположенных включений кремния возникших в результате механической обработки. Показано различие в качестве пленок серы нанесенных с помощью термоиспарения и капельным методом.

Введение

При создании новых конструкционных материалов для существующих типов ядерных реакторов и реакторов нового поколения приходится сталкиваться с множеством технологических вызовов. Эти вызовы связаны с сильными радиационными повреждениями материалов. В связи с этим возникает необходимость в изучении поведения материалов под действием тепло- и радиационных нагрузок. Зернистая структура является характерной структурой массивных образцов. Вследствие этого, сегрегация примеси на границах зерен представляет собою одну из главных причин, приводящих к разрушению материала [1-3]. Для исследования влияния облучения на процесс сегрегации необходимо выполнение следующих условий: 1) требуются пучки с высокой плотностью тока для набора необходимой дозы за короткое время; 2) должна быть обеспечена возможность использования ионов разных сортов для изучения влияния различных типов создаваемых дефектов на процесс сегрегации; 3) требуется метод, позволяющий строить карты распределения элементов, поскольку сегрегация происходит по границам зерен; 4) этот метод должен иметь низкий предел обнаружения примесных атомов с целью выявления сегрегации на ранних этапах. Ядерный сканирующий микрозонд (ЯСМЗ) удовлетворяет всем перечисленным требованиям. Благодаря фокусирующей системе он позволяет получать пучки с высокой плотностью тока. При этом есть возможность получать пучки с равномерным распределением тока в плоскости мишени, а также сохранять размер сфокусированного пучка с изменением энергии без смещения образца [4]. Тандемные ускорители, на базе которых часто создаются установки ЯСМЗ, позволяют получать пучки ионов в широком диапазоне (от водорода до висмута). С помощью ЯСМЗ можно получать двумерные карты распределения элементов, используя метод микро-PIXE, основанный на регистрации характеристического рентгеновского излучения (ХРИ) в каждой позиции сфокусированного пучка в растре

сканирования. При этом чувствительность данного метода на два порядка выше, чем у РЭМ с ЭДС.

Исследование диффузии примеси к границам зерен под действием облучения планируется осуществлять в четыре этапа. На первом этапе требуется подготовить образцы конструкционного материала с размерами зерен, которые позволяют исследовать сегрегацию примеси на их границах выбранными ядерно-физическими методами. На следующем этапе на поверхность образца необходимо равномерно нанести пленку из элемента, являющегося характерной примесью для выбранного материала. На третьем этапе осуществляется облучение образца в области нанесенной пленки. Финальный этап заключается в изучении миграции примеси на границах зерен в зависимости от дозы облучения за счет построения карт распределения элементов.

В данной работе показано применение ЯСМЗ в получении качественных образцов для рассматриваемой задачи. В роли конструкционного материала была выбрана медь, а в качестве примеси – сера. Данный выбор связан с широким применением меди в ускорительной, ядерной технике, создании сверхпроводников. Сера же является одной из главных неметаллических примесей способствующая ухудшению свойств выбранного материала и приводящая к его разрушению.

Подготовка образцов

Тестовые образцы изготавливались из чистой меди. Для шлифовки и полировки использовали наждачные бумаги и полировочные пасты. В процессе механической обработки контроль качества поверхности образцов осуществлялся с помощью микроскопа МБС-10. Для выявления микроструктуры использовался реактив на основе хлорной меди (4 г) и 25% раствора аммиака (50 мл). Нанесение пленок серы проводилось двумя методами: термоиспарением в ВУПе и капельным методом с использованием раствора серы в этиловом спирте. При нанесении серы в ВУПе образец закры-

вался алюминиевой фольгой, в которой было проделано отверстие размерами $\sim 300 \times 400$ мкм. Из-за малой плотности и формы серы в виде порошка нанесение пленки осуществлялось в три этапа. В случае капельного метода толщина нанесенной пленки задавалась количеством капель осажденных друг на друга. Каждая новая капля наносилась после полного высыхания предыдущей.

Исследование образцов

Исследование образцов проводилось на канале ЯСМЗ [5] аналитического ускорительного комплекса ИПФ НАН Украины. Для построения карт распределения химических элементов применялся метод микро-PIXE. При сканировании момент перехода от точки к точке определялся величиной накопленного заряда заданной экспериментатором. В экспериментах использовались протоны с энергией 1,2; 1,5; 1,6 МэВ. Размер пучка на мишени находился в пределах 4-5 мкм.

Перед нанесением пленки серы, подготовленные медные образцы были исследованы на предмет посторонних примесей, которые могли появиться в процессе обработки. Фотография микроструктуры одного из образцов, позволяющая оценить размер зерен поликристалла меди, представлена на рис. 1. Белым квадратом выделена область, выбранная для детального изучения.

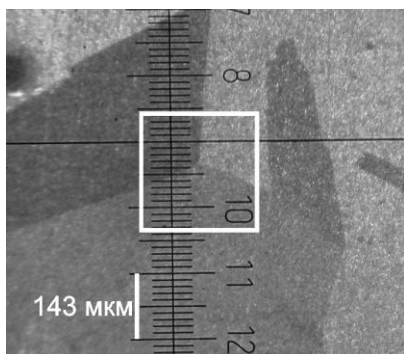


Рис. 1. Микроструктура подготовленного медного образца.

Исследуемые образцы помещались в камеру взаимодействия и облучались пучком протонов, ориентированном по нормали к поверхности при давлении 10^{-4} Па. ХРИ регистрировалось Si-PIN-детектором XR-100CR фирмы Amptek. Набранный интегральный спектр показал наличие кремния в образце (рис. 2а). На построенных картах распределения элементов (рис. 2б) можно увидеть, что кремний расположен в образце не равномерно, и представляет собой хаотично расположенные включения. Наиболее крупные из них достигают размеров до 30 мкм в длину (рис. 2в). Появление таких включений связано с обработкой образца, поскольку шлифовальные шкурки, которые использовали при шлифовке, изготовлены из карбида кремния. Этому нежелательному результату способствует и сам образец, поскольку медь довольно мягкий металл, и поэтому разломленные кристаллы наждачной бумаги легко

врезаются в образец. В дальнейшем качество обработки было улучшено и следов кремния в новых подготовленных образцах не осталось.

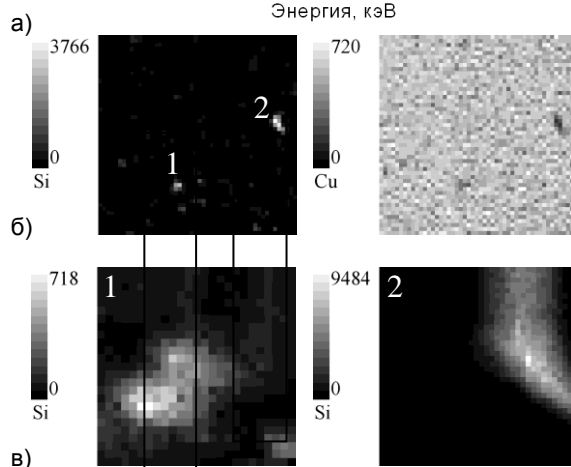
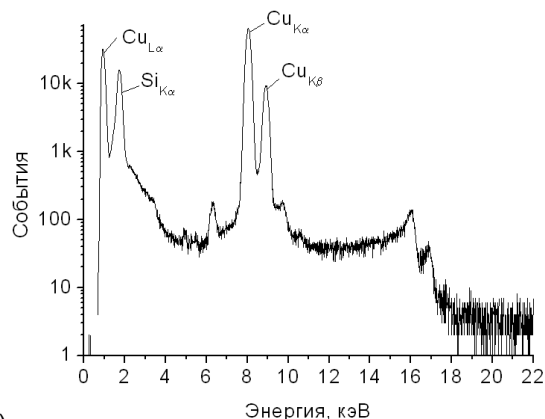


Рис. 2. Анализ области образца выделенной на рис. 1: а) интегральный спектр, б) карты распределения элементов (размер растров – 250×250 мкм), в) увеличенные фрагменты включений (размер раstra 1 – 25×25 мкм, размер раstra 2 – 38×38 мкм).

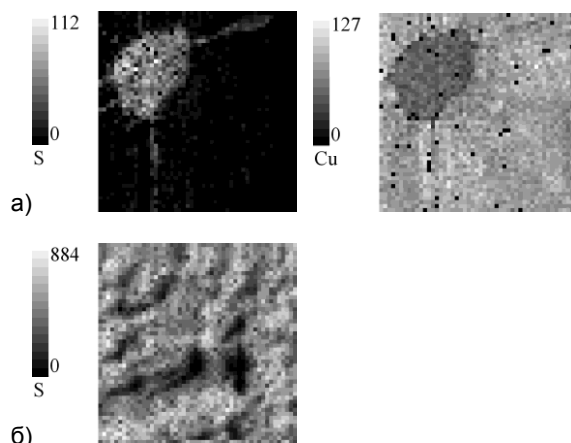


Рис. 3. Распределение элементов в образце с нанесенной пленкой серы с применением ВУПа. а) общий вид (размер раstra – 1×1 мм), б) увеличенный фрагмент центральной части пленки (размер раstra – 100×100 мкм).

На рис. 3а приведены карты распределения, на которых показаны размеры осажденной пленки серы полученной с помощью ВУПа. Отдельные

черные точки на картах вызваны кратковременным отсутствием облучающего пучка и как результат отсутствием генерируемых рентгеновых квантов. В этом случае заряд необходимый для перехода на следующую точку набирался за счет фонового тока. При детальном исследовании нанесенной пленки было обнаружено неравномерное распределение серы (рис. 3б).

Размеры пленки серы полученной капельным методом составляют 5 мм в диаметре. Их анализ показал хорошую равномерность распределения серы (рис. 4).

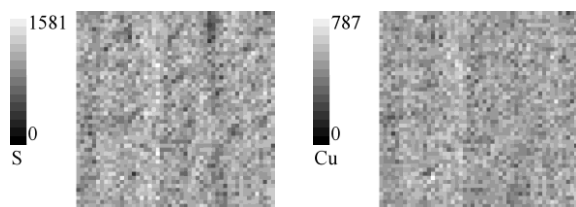


Рис. 4. Распределение элементов в образце с нанесенной пленкой серы полученной капельным методом (размер растров – 200×200 мкм).

Заключение

Результаты проведенных исследований показали эффективность применения ЯСМЗ использующего ядерно-физический метод анализа для контроля пробоподготовки в задачах радиационно-стимулированной миграции примеси. Проведенное измерение распределения элементов

после механической и химической обработки меди обнаружило, что в образце могут остаться кристаллы абразива в виде отдельных включений. Было установлено, что пленка серы, осажденная методом термоиспарения, имеет неравномерное распределение, связанное с особенностями напыления, вызванными физическими свойствами самого материала. Покрытие, полученное капельным методом, напротив, характеризуется хорошей равномерностью.

Работа выполнена в рамках целевой программы научных исследований Отделения ядерной физики и энергетики НАН Украины “Развитие перспективных направлений фундаментальных исследований в ядерной, радиационной физике и ядерной энергетике” (Государственный регистрационный номер № 0111U10610).

Список литературы

1. García-Mazarío M., Lancha A.M., Hernández-Mayoral M. // J. Nucl. Materials. 2007. V. 360. P. 293-303.
2. Ilyin A.M., Shestakov V.P., Tazhibaeva I.L. // J. Nucl. Materials. 2000. V. 283-287. P. 161-163.
3. Völkl R., Behrends A., Merker J. et al. // Materials Science and Engineering: A. 2004. V. 368. P. 109-116.
4. Romanenko A.V., Ponomarev A.G. // J. Nucl. Instr. and Meth. B. 2015. V. 348. P. 115-118.
5. Storizhko V.E., Ponomarev A.G., Rebrov V.A. et al. // J. Nucl. Instr. and Meth. B. 2007. V. 260. P. 49-54.

THE USE OF NUCLEAR SCANNING MICROPROBE TO STUDY RADIATION-INDUCED MIGRATION OF IMPURITIES ALONG THE GRAIN BOUNDARIES IN CONSTRUCTION MATERIALS

A.V. Romanenko, A.G. Ponomarev
Institute of applied physics National academy of sciences of Ukraine,
Petropavlovskaja Str., 58, Sumy, 40000, Ukraine,
romanenko@ipflab.sumy.ua, ponom@ipflab.sumy.ua

The application of scanning nuclear microprobe for study a radiation-induced migration of impurities at the grain boundaries in structural materials was considered. The work describes the sample preparation for a further irradiation of microscopic areas which include a few grains. Copper samples with deposited sulfur film were used in the present work. Determinations of a chemical composition of the samples, as well as a mapping of the element distribution, were based on the analysis of characteristic X-ray emission, which is a product of the particle and target atoms interaction. Two-dimensional distribution maps of elements, that revealed a presence of randomly distributed inclusions of silicon as a result of machining, were obtained using the method of micro-PIXE. The quality difference of sulfur films deposited by thermal evaporation and drop method was shown.